

## PENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION  
(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

|  |   |
|--|---|
| Date of mailing:<br>23 November 2000 (23.11.00)      | To:<br>Commissioner<br>US Department of Commerce<br>United States Patent and Trademark<br>Office, PCT<br>2011 South Clark Place Room<br>CP2/5C24<br>Arlington, VA 22202<br>ETATS-UNIS D'AMERIQUE<br>in its capacity as elected Office |
| International application No.:<br>PCT/EP00/04013     | Applicant's or agent's file reference:<br>LEA33707-WO   |
| International filing date:<br>04 May 2000 (04.05.00) | Priority date:<br>12 May 1999 (12.05.99)  |
| Applicant:<br>GESING, Ernst, Rudolf, F. et al        |   |

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

 in the demand filed with the International preliminary Examining Authority on:

29 September 2000 (29.09.00)

 in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

---

2. The election  was was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

|   |   |
|---|---|
| The International Bureau of WIPO<br>34, chemin des Colombettes<br>1211 Geneva 20, Switzerland<br>Facsimile No.: (41-22) 740.14.35 | Authorized officer:<br>J. Zahra<br>Telephone No.: (41-22) 338.83.38 |
|---|---|

## PATENT COOPERATION TREATY

## PCT

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

|   |   |  |
|---|---|--|
| Applicant's or agent's file reference<br>LEA33707-WO  | <b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416) |  |
| International application No.<br>PCT/EP00/04013   | International filing date (day/month/year)<br>04 May 2000 (04.05.00)  | Priority date (day/month/year)<br>12 May 1999 (12.05.99) |
| International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC<br>C07C 261/00 |   |  |
| Applicant<br>BAYER AKTIENGESELLSCHAFT   |   |  |

|  |
|--|
| <p>1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.</p> <p>2. This REPORT consists of a total of <u>7</u> sheets, including this cover sheet.</p> <p><input type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).</p> <p>These annexes consist of a total of _____ sheets.</p>  |
| <p>3. This report contains indications relating to the following items:</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report</li> <li>II <input type="checkbox"/> Priority</li> <li>III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability</li> <li>IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention</li> <li>V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement</li> <li>VI <input checked="" type="checkbox"/> Certain documents cited</li> <li>VII <input type="checkbox"/> Certain defects in the international application</li> <li>VIII <input checked="" type="checkbox"/> Certain observations on the international application</li> </ul> |

|  |  |
|--|--|
| Date of submission of the demand<br>29 September 2000 (29.09.00) | Date of completion of this report<br>07 August 2001 (07.08.2001) |
| Name and mailing address of the IPEA/EP                          | Authorized officer   |
| Facsimile No.  | Telephone No.  |

## I. Basis of the report

## 1. With regard to the elements of the international application:\*

 the international application as originally filed the description:

pages \_\_\_\_\_, as originally filed

pages \_\_\_\_\_, filed with the demand

pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

 the claims:

pages \_\_\_\_\_, as originally filed

pages \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement under Article 19

pages \_\_\_\_\_, filed with the demand

pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

 the drawings:

pages \_\_\_\_\_, as originally filed

pages \_\_\_\_\_, filed with the demand

pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

 the sequence listing part of the description:

pages \_\_\_\_\_, as originally filed

pages \_\_\_\_\_, filed with the demand

pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

## 2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:

 the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)). the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)). the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

## 3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

 contained in the international application in written form. filed together with the international application in computer readable form. furnished subsequently to this Authority in written form. furnished subsequently to this Authority in computer readable form. The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished. The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.4.  The amendments have resulted in the cancellation of: the description, pages \_\_\_\_\_ the claims, Nos. \_\_\_\_\_ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_5.  This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).\*\*

\* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

\*\* Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

**INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT**

International application No.

PCT/EP00/04013

**VI. Certain documents cited**

## 1. Certain published documents (Rule 70.10)

| Application No.<br>Patent No. | Publication date<br>(day/month/year) | Filing date<br>(day/month/year) | Priority date (valid claim)<br>(day/month/year) |
|-------------------------------|--------------------------------------|---------------------------------|---|
|                               |                                      |                                 |   |

## 2. Non-written disclosures (Rule 70.9)

| Kind of non-written disclosure | Date of non-written disclosure<br>(day/month/year) | Date of written disclosure<br>referring to non-written disclosure<br>(day/month/year) |
|--------------------------------|--|---|
|                                |  |   |

See Annex

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.  
PCT/EP 00/04013

## V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

## 1. Statement

|                               |        |      |     |
|-------------------------------|--------|------|-----|
| Novelty (N)                   | Claims | 7, 8 | YES |
|                               | Claims | 1-6  | NO  |
| Inventive step (IS)           | Claims | 1-8  | YES |
|                               | Claims |      | NO  |
| Industrial applicability (IA) | Claims | 1-8  | YES |
|                               | Claims |      | NO  |

## 2. Citations and explanations

D2: EP-A-0 314 852

D3: EP-A-0 347 378

D4: EP-A-0 412 531

D5: EP-A-0 389 861

D6: WO 95/02589 A

D7: EP-A-0 275 603

D8: US-A-4 684 398

D9: US-A-4 661 520

1. The present application does not satisfy the requirements of PCT Article 33(2) since the subject matter of Claims 1-6 is not novel.

D2 discloses intermediates of the formula  $X-NH-CH=N-CN$  (II) for the preparation of 1,5-disubstituted imidazoles, which are valuable herbicidal and plant growth regulating substances. Said formula (II) corresponds to compounds of the formula (I) of the present application in which  $R^1$  represents hydrogen. D2 describes - see pages 17-18 - the preparation of said compounds by reacting the corresponding amines with ethoxymethylene cyanamide

/...

- see Example 1.01. Table 1 of D2 - see pages 19-23  
- lists the compounds 1.01, 1.02, 1.05-1.14, 1.16-  
1.24, 1.31-1.41, 1.45-1.54, 1.58-1.75, 1.79-1.95,  
1.99-1.129, which are encompassed by Claims 1-5 of  
the present application. In consequence, D2 is  
prejudicial to Claims 1-6.

D3 discloses the compound N-cyano-N<sup>1</sup>-(5,6-dihydro-  
5,5-dimethyl-4H-cyclopenta[b]thiophen-4-yl)-  
formamidine - see page 12, production stage c) in  
Example H1. The compound is produced by reacting N-  
cyanoimidoformic acid ethyl ester with 4-amino-5,6-  
dihydro-5,5-dimethyl-4H-cyclopenta[b]thiophene.

D3 is prejudicial to Claims 1-3 and 6.

D4 discloses benzopyran compounds of the general  
formula (I) - see D4, Claim 1 - which, where R<sup>1</sup>  
represents hydrogen, all are encompassed by Claim 1  
of the present application. Concrete prejudicial  
examples are to be found in the six compounds  
disclosed in Claim 5, compounds (1)-(9), (34)-(40),  
(43) and (44) on pages 6 and 7 and Examples 1-6, 10,  
13-50 and 82-85 on pages 12-32. The majority of  
said compounds are, moreover, also prejudicial to  
Claims 2 and 3 of the present application. In the  
examples on pages 13 ff., the reaction of the  
corresponding amine with an N-cyanoimide acid ester  
is described. Thus D4 runs prejudicially counter to  
Claims 1-3 and 6.

D5 likewise discloses benzopyran compounds - see  
Claim 1 - the general formula of which overlaps with  
that of the present application. The test compound  
(2) - see page 8, line 52 - and the compounds

/...

produced in the examples 12-18, 20(1)-20(7), 21(1), 21(2), 22(1), 22(2), 23, 26(1), 26(2), 27(1), 27(2), 29(1), 29(3), 30 and 32 on pages 21-32 come under the present Claim 1 and, with a few exceptions, also under the present Claims 2 and 3. In the examples on pages 21 ff., the reaction of the corresponding amine with an N-cyanoimide acid ester is described. D5 is likewise prejudicial to Claims 1-3 and 6.

D6 discloses chromane derivates of the general formula (I) - see abstract - which have an area of overlap with the formula (I) of the present application in the case where, in the subformula (a) of D6, X stands for -N-CN and R<sup>7</sup> represents hydrogen and R<sup>6</sup> an alkyl group. The compounds 30, 33, 36, 41, 49 and 71 in the table on pages 68-75 and the compounds 1-12, 16-18, 22-33, 37-39, 43-53, 57-59, 63-74 and 78-80 in the table on pages 77-79 are encompassed by Claim 1 of the present application. D6 is therefore prejudicial to the present Claim 1.

D2 to D6, however, do not disclose the use of the claimed compounds to combat unwanted plant growth or of herbicides containing these compounds (Claims 7 and 8).

2. The compounds disclosed in D2 to D6 that are prejudicial to the present application are not described as herbicides in said prior art. The cyanoguanidine compound described in D9 is used to promote growth in animals.

The herbicides disclosed in D7 are tricyclic imidazole derivates, which carry carbonic acids or ester groups in the 5-position.

The herbicides described in D8 are cyanoguanidines or cyanoisothiourea compounds, whilst those disclosed in the present application are N-cyanoamidines.

Since the compounds described in the prior art, likewise used as herbicides and thus providing a solution to the problem, are clearly different from the claimed herbicides there is no objection to acknowledging an inventive step insofar as the compounds are novel.

3. Industrial applicability can also be acknowledged.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.  
PCT/EP 00/04013

**Supplemental Box**

(To be used when the space in any of the preceding boxes is not sufficient)

Continuation of: VI

D1: DE 199 24 273 A (BAYER), 20 January 2000

Attention is drawn in particular to the compounds 2, 46, 47, 67, 68, 83, 84, 128, 163, 164, 168, 199, 216, 239 and 260 in Table A (pages 40-61) and also to the compounds B2-B7, B12 and B13 in Table B (pages 62-63).

**VIII. Certain observations on the international application**

The following observations on the clarity of the claims, description, and drawings or on the question whether the claims are fully supported by the description, are made:

1. The addition of the words "where all cyclic and heterocyclic groupings can be substituted" is vague and undefined and renders the subject matter of the claim unclear (PCT Article 6).

Furthermore the person skilled in the art is aware that not every optional substituent can be present in the claimed compounds without the effectiveness and applicability of the herbicides being impaired thereby.

2. The term "reaction aid" is vague and unclear (PCT Article 6).

PCT

## INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)



|   |   |   |
|---|---|---|
| Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts<br>LEA33707-WO  | <b>WEITERES VORGEHEN</b>                                    | siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416) |
| Internationales Aktenzeichen<br>PCT/EP00/04013  | Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr)<br>04/05/2000 | Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag)<br>12/05/1999   |
| Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK<br>C07C261/00 |   |   |
| Anmelder<br>BAYER AKTIENGESELLSCHAFT  |   |   |

1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.

2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 7 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.

Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I  Grundlage des Berichts
- II  Priorität
- III  Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV  Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V  Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI  Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII  Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII  Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

|  |   |
|--|---|
| Datum der Einreichung des Antrags<br>29/09/2000  | Datum der Fertigstellung dieses Berichts<br>07.08.2001                  |
| Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:<br>Europäisches Patentamt<br>D-80298 München<br>Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d<br>Fax: +49 89 2399 - 4465 | Bevollmächtigter Bediensteter<br>Herzog, A<br>Tel. Nr. +49 89 2399 8033 |



**I. Grundlage des Berichts**

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigefügt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17): Beschreibung, Seiten:*):

1-24 ursprüngliche Fassung

**Patentansprüche, Nr.:**

1-8 ursprüngliche Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- Beschreibung, Seiten:
- Ansprüche, Nr.:
- Zeichnungen, Blatt:

5.  Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

*(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).*

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

**V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

1. Feststellung

|                                |                     |
|--------------------------------|---------------------|
| Neuheit (N)                    | Ja: Ansprüche 7,8   |
|                                | Nein: Ansprüche 1-6 |
| Erfinderische Tätigkeit (ET)   | Ja: Ansprüche 1-8   |
|                                | Nein: Ansprüche     |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (GA) | Ja: Ansprüche 1-8   |
|                                | Nein: Ansprüche     |

2. Unterlagen und Erklärungen

**siehe Beiblatt**

**VI. Bestimmte angeführte Unterlagen**

1. Bestimmte veröffentlichte Unterlagen (Regel 70.10)

und / oder

2. Nicht-schriftliche Offenbarungen (Regel 70.9)

**siehe Beiblatt**

**VIII. Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung**

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken:  
**siehe Beiblatt**

**Zu Punkt V**

**Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

D2: EP-A-0 314 852

D7: EP-A-0 275 603

D3: EP-A-0 347 378

D8: US-A-4 684 398

D4: EP-A-0 412 531

D9: US-A-4 661 520

D5: EP-A-0 389 861

D6: WO 95 02589 A

1. Die vorliegende Anmeldung erfüllt nicht die Erfordernisse des Artikels 33(2) PCT, da der Gegenstand der Ansprüche 1-6 nicht neu ist.

D2 offenbart Zwischenverbindungen der Formel X-NH-CH=N-CN (II) zur Darstellung von 1,5-disubstituierten Imidazolen, welche wertvolle herbizide bzw. pflanzenwachstumsregulatorische Wirkstoffe darstellen.

Die besagte Formel II entspricht Verbindungen der Formel (I) der vorliegenden Anmeldung, in denen R<sup>1</sup> Wasserstoff repräsentiert.

Auf den Seiten 17-18 in D2 ist die Darstellung dieser Verbindungen durch Reaktion des entsprechenden Amins mit Ethoxymethylencyanamid beschrieben (siehe Beispiel 1.01).

In Tabelle 1 in D2 (Seite 19-23) sind die Verbindungen 1.01, 1.02, 1.05-1.14, 1.16-1.24, 1.31-1.41, 1.45-1.54, 1.58-1.75, 1.79-1.95, 1.99-1.129 aufgelistet, die unter die vorliegenden Ansprüche 1-5 fallen.

D2 steht daher den Ansprüchen 1-6 neuheitsschädlich entgegen.

D3 offenbart die Verbindung N-Cyano-N'-(5,6-dihydro-5,5-dimethyl-4H-cyclopenta[b]thiophen-4-yl)-formamidin (siehe Seite 12, Herstellungsstufe c) in Beispiel H1). Die Verbindung wird hergestellt durch Reaktion von N-Cyanimidooameisensäure- ethylester mit 4-Amino-5,6-dihydro-5,5-dimethyl-4H-cyclopenta[b]thiophen.

D3 ist neuheitsschädlich für die Ansprüche 1-3 und 6.

D4 offenbart Benzopyranverbindungen der allgemeinen Formel (I) (siehe Anspruch 1 in D4), die für den Fall, daß R<sup>1</sup> Wasserstoff repräsentiert, in ihrer Gesamtheit unter den vorliegenden Anspruch 1 fällt.

Konkrete neuheitsschädliche Beispiele sind die 6 in Anspruch 5 aufgeführten Verbindungen, die Verbindungen (1)-(9), (34)-(40), (43) und (44) auf den Seiten 6 und 7 sowie die Beispiele 1-6, 10, 13-50 and 82-85 auf den Seiten 12-32. Die Mehrzahl dieser Verbindungen ist außerdem auch neuheitsschädlich für die vorliegenden Ansprüche 2 und 3.

In den Beispielen auf Seite 13 ff. ist die Reaktion der entsprechenden Amine mit einem N-Cyanoimidsäureester beschrieben.

D4 steht damit den Ansprüchen 1-3 und 6 neuheitsschädlich entgegen.

D5 offenbart ebenfalls Benzopyranverbindungen (siehe Anspruch 1), deren allgemeine Formel mit derjenigen vorliegender Anmeldung überlappt.

Die Testverbindung (2) (Seite 8, Zeile 52) und die in den Beispielen 12-18, 20(1)-20(7), 21(1), 21(2), 22(1), 22(2), 23, 26(1), 26(2), 27(1), 27(2), 29(1), 29(3), 30 und 32 auf den Seiten 21-32 hergestellten Verbindungen fallen unter vorliegenden Anspruch 1 und mit wenigen Ausnahmen auch unter die vorliegenden Ansprüche 2 und 3.

In den Beispielen auf Seite 21 ff. ist die Reaktion der entsprechenden Amine mit einem N-Cyanoimidsäureester beschrieben.

D5 steht damit ebenfalls den Ansprüchen 1-3 und 6 neuheitsschädlich entgegen.

D6 offenbart Chromanderivate der allgemeinen Formel (I) (siehe Zusammenfassung), die mit der Formel (I) vorliegender Anmeldung einen Überlappungsbereich aufweist für den Fall, daß in der Teilformel (a) in D6 X die Bedeutung -N-CN hat und R<sup>7</sup> Wasserstoff und R<sup>6</sup> eine Alkylgruppe repräsentiert. Die Verbindungen 30, 33, 36, 41, 49 und 71 in der Tabelle auf den Seiten 68-75 sowie die Verbindungen 1-12, 16-18, 22-33, 37-39, 43-53, 57-59, 63-74 und 78-80 in der Tabelle auf den Seiten 77-79 fallen unter den vorliegenden Anspruch 1. D6 ist daher neuheitsschädlich für vorliegenden Anspruch 1.

In D2-D6 nicht offenbart sind hingegen die Verwendung der vorliegenden Verbindungen zur Bekämpfung von unerwünschten Pflanzen und diese Verbindungen enthaltende herbizide Mittel (Ansprüche 7 und 8).

2. Die in D2-D6 offenbarten Verbindungen, die der vorliegenden Anmeldung neuheitsschädlich entgegenstehen, werden in diesen Dokumenten nicht als Herbizide beschrieben. Die in D9 beschriebene Cyanoguanidin-Verbindung wird als Wachstumsförderer bei Tieren eingesetzt.

Bei den in D7 offenbarten Herbiziden handelt es sich um tricyclische Imidazolderivate, die in 5-Position eine Carbonsäure- oder Estergruppe tragen.

Die in D8 beschriebenen Herbizide sind Cyanoguanidine oder Cyanoisothioharnstoff-Verbindungen, während es sich bei den vorliegenden Herbiziden um N-Cyanoamidine handelt.

Da sich die im Stand der Technik beschriebenen Verbindungen, die ebenfalls als Herbizide eingesetzt werden und somit dieselbe Aufgabe lösen, deutlich von den vorliegenden Herbiziden unterscheiden, bestehen keine Einwände gegen die erfinderische Tätigkeit, soweit die Verbindungen neu sind.

3. Die industrielle Anwendbarkeit kann ebenfalls anerkannt werden.

**Zu Punkt VI**

**Bestimmte angeführte Unterlagen**

D1: DE 199 24 273 A (BAYER) 20. Januar 2000

Es wird insbesondere auf die Verbindungen 2, 46, 47, 67, 68, 83, 84, 128, 163, 164, 168, 199, 216, 239 und 260 in Tabelle A (Seite 40-61) sowie auf die Verbindungen B2-B7, B12 und B13 in Tabelle B (Seite 62-63) hingewiesen.

**Zu Punkt VIII**

**B. stimmte Bemerkung zur internationalen Anmeldung**

1. Der Zusatz "...wobei alle cyclischen und heterocyclischen Gruppierungen substituiert sein können" in Anspruch 1 ist vage und unbestimmt und macht den Gegenstand des Anspruchs unklar (Artikel 6 PCT).  
Zudem ist dem Fachmann bewußt, daß nicht jeder beliebige Substituent in den erfindungsgemäßen Verbindungen vorhanden sein kann, ohne daß die herbizide Wirkung oder Anwendbarkeit verloren ginge. Es können daher nicht alle unter diese Definition fallenden Verbindungen die gestellte Aufgabe lösen (Artikel 33(3) PCT).
2. Der Begriff "Reaktionshilfsmittel" ist vage und unklar (Artikel 6 PCT).

**VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT  
AUF DEM GEBIET DES PATENTWAHLRECHTS**

**PCT**

**INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT**

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

|   |   |   |
|---|---|---|
| Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts<br><b>LEA33707-W0</b> | <b>WEITERES<br/>VORGEHEN</b>  | siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5 |
| Internationales Aktenzeichen<br><b>PCT/EP 00/ 04013</b>       | Internationales Anmeldedatum<br>(Tag/Monat/Jahr)<br><b>04/05/2000</b> | (Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr)<br><b>12/05/1999</b>   |
| Anmelder<br><b>BAYER AKTIENGESELLSCHAFT</b>                   |   |   |

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 3 Blätter.

Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

**1. Grundlage des Berichts**

a. Hinsichtlich der **Sprache** ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das

in der internationalen Anmeldung in Schriftlicher Form enthalten ist.

zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.

bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.

Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2.  **Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen** (siehe Feld I).

3.  **Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung** (siehe Feld II).

4. Hinsichtlich der **Bezeichnung der Erfindung**

wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

5. Hinsichtlich der **Zusammenfassung**

wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

6. Folgende Abbildung der **Zeichnungen** ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. ---

wie vom Anmelder vorgeschlagen

weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.

weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.

keine der Abb.

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

EP 00/04013

A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES  
IPK 7 C07C261/00 A01N37/52

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)  
IPK 7 C07C A01N

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, CHEM ABS Data, BEILSTEIN Data

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

| Kategorie <sup>o</sup> | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile                            | Betr. Anspruch Nr. |
|------------------------|---|--------------------|
| P, X                   | DE 199 24 273 A (BAYER)<br>20. Januar 2000 (2000-01-20)<br>Seite 62, Beispiele B2 - B7<br>---                                 | 1-6                |
| X                      | EP 0 314 852 A (CIBA-GEIGY)<br>10. Mai 1989 (1989-05-10)<br>Seite 17, Beispiele 1.01, 1.02; Seiten<br>19-23, Tabelle 1<br>--- | 1-4, 6             |
| X                      | EP 0 347 378 A (CIBA-GEIGY)<br>13. Juni 1988 (1988-06-13)<br>Beispiel 5C<br>---   | 1-3, 6             |
| X                      | EP 0 412 531 A (KAKEN PHARMACEUTICAL)<br>13. Februar 1991 (1991-02-13)<br>Ansprüche; Beispiele<br>---                         | 1<br>-/-           |



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

<sup>o</sup> Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

- \*A\* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
- \*E\* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
- \*L\* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
- \*O\* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
- \*P\* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

\*T\* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

\*X\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfindnerischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

\*Y\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfindnerischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

\*&\* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

15. August 2000

06/09/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Zervas, B

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

EP 00/04013

## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

| Kategorie <sup>o</sup> | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile   | Betr. Anspruch Nr. |
|------------------------|--|--------------------|
| X                      | EP 0 389 861 A (FUJISAWA PHARMACEUTICAL)<br>3. Oktober 1990 (1990-10-03)<br>Beispiele<br>---   | 1                  |
| X                      | WO 95 02589 A (JAPAN TOBACCO)<br>26. Januar 1995 (1995-01-26)<br>Seite 77 -Seite 79<br>---   | 1                  |
| X                      | EP 0 275 603 A (JANSSEN PHARMACEUTICA)<br>27. Juli 1988 (1988-07-27)<br>Beispiel 4B<br>---   | 1                  |
| A                      | US 4 684 398 A (JOSEPH E. DUNBAR ET AL.)<br>4. August 1987 (1987-08-04)<br>in der Anmeldung erwähnt<br>Ansprüche<br>---                                  | 1,7,8              |
| A                      | US 4 661 520 A (JOSEPH E. DUNBAR ET AL.)<br>28. April 1987 (1987-04-28)<br>in der Anmeldung erwähnt<br>Spalte 5, Zeile 13 - Zeile 14; Ansprüche<br>----- | 1,7,8              |

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

Information on patent family members

International Application No

EP 00/04013

| Patent document cited in search report |   | Publication date |  | Patent family member(s)   |  | Publication date   |
|--|---|------------------|--|---|--|--|
| DE 19924273                            | A | 20-01-2000       |  | AU 5157399 A<br>WO 0003976 A  |  | 07-02-2000<br>27-01-2000   |
| EP 314852                              | A | 10-05-1989       |  | AU 8255487 A<br>BR 8706929 A<br>CA 1294612 A<br>IL 84809 A<br>JP 1135772 A<br>US 4921955 A<br>ZA 8709396 A  |  | 11-05-1989<br>18-07-1989<br>21-01-1992<br>01-12-1992<br>29-05-1989<br>01-05-1990<br>26-07-1989   |
| EP 347378                              | A | 20-12-1989       |  | JP 2042077 A<br>US 4992090 A<br>ZA 8904414 A  |  | 13-02-1990<br>12-02-1991<br>28-02-1990   |
| EP 412531                              | A | 13-02-1991       |  | AT 105556 T<br>AU 624526 B<br>AU 6084490 A<br>CA 2022882 A<br>CZ 9003933 A<br>DE 69008791 D<br>DE 69008791 T<br>HU 54673 A<br>NO 174050 C<br>US 5095016 A<br>CN 1049500 A<br>JP 3279377 A<br>JP 3279378 A |  | 15-05-1994<br>11-06-1992<br>14-02-1991<br>12-02-1991<br>12-02-1997<br>16-06-1994<br>12-01-1995<br>28-03-1991<br>09-03-1994<br>10-03-1992<br>27-02-1991<br>10-12-1991<br>10-12-1991 |
| EP 389861                              | A | 03-10-1990       |  | AT 126795 T<br>CA 2013163 A<br>DE 69021755 D<br>DE 69021755 T<br>JP 2300182 A<br>US 5104890 A   |  | 15-09-1995<br>28-09-1990<br>28-09-1995<br>15-02-1996<br>12-12-1990<br>14-04-1992   |
| WO 9502589                             | A | 26-01-1995       |  | NONE  |  |  |
| EP 275603                              | A | 27-07-1988       |  | AU 595085 B<br>AU 8297687 A<br>BR 8707032 A<br>DK 682187 A<br>HU 46677 A, B<br>IL 84916 A<br>JP 63166869 A<br>PH 24230 A<br>US 4830664 A<br>US 4927449 A<br>ZA 8709613 A                                  |  | 22-03-1990<br>23-06-1988<br>02-08-1988<br>24-06-1988<br>28-11-1988<br>18-07-1991<br>11-07-1988<br>04-05-1990<br>16-05-1989<br>22-05-1990<br>30-08-1989                             |
| US 4684398                             | A | 04-08-1987       |  | US 4689348 A<br>US 4692467 A  |  | 25-08-1987<br>08-09-1987   |
| US 4661520                             | A | 28-04-1987       |  | NONE  |  |  |

**PCT**WORLD ORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM  
Internationales BüroINTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICH NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

|   |   |    |  |
|---|---|----|--|
| (51) Internationale Patentklassifikation 7 :<br><br>C07C 261/00, A01N 37/52 |   | A1 | (11) Internationale Veröffentlichungsnummer: <b>WO 00/69813</b>              |
|   |   |    | (43) Internationales<br>Veröffentlichungsdatum: 23. November 2000 (23.11.00) |
| (21) Internationales Aktenzeichen:  | PCT/EP00/04013  |    |  |
| (22) Internationales Anmeldedatum:  | 4. Mai 2000 (04.05.00)  |    |  |
| (30) Prioritätsdaten:   | 199 21 886.2 12. Mai 1999 (12.05.99)  | DE |  |
| (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US):                      | BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE).  |    |  |
| (72) Erfinder; und  |   |    |  |
| (75) Erfinder/Anmelder (nur für US):  | GESING, Ernst, Rudolf, F. [DE/DE]; Trillser Graben 4, D-40699 Erkrath-Hochdahl (DE). HENSE, Achim [DE/DE]; Lingemannstr. 15, D-42799 Leichlingen (DE). KATHER, Kristian [DE/DE]; Grabenstr. 21, D-40789 Monheim (DE). LEHR, Stefan [DE/DE]; Ricarda-Huch-Str. 38, D-40764 Langenfeld (DE). RIEBEL, Hans-Jochem [DE/DE]; Heimatstr. 1, D-56242 Selters (DE). ROHE, Lothar [DE/DE]; Damaschkeweg 75, D-42113 Wuppertal (DE). VOIGT, Katharina [DE/DE]; Radstädter Weg 8, D-40789 Monheim (DE). DREWES, Mark, Wilhelm [DE/DE]; Goethestr. 38, D-40764 Langenfeld (DE). FEUCHT, Dieter [DE/DE]; Ackerweg 9, D-40789 Monheim (DE). PONTZEN, Rolf [DE/DE]; Am Kloster 69, D-42799 Leichlingen (DE). |    |  |
| (54) Title:   | SUBSTITUTED N-CYANO AMIDINES  |    |  |
| (54) Bezeichnung:   | SUBSTITUIERTE N-CYANO-AMIDINE   |    |  |
|   | $  \begin{array}{c} \text{R}^2 \\   \\ \text{R}^1 - \text{N} - \text{H} \\    \\ \text{N} - \text{CN} \end{array} \quad (1)  $  |    |  |
| (57) Abstract   | <p>The invention relates to novel substituted N-cyano amidines of general formula (I) in which: R<sup>1</sup> represents hydrogen or optionally substituted alkyl, alkenyl, alkynyl, cycloalkyl, cycloalkylalkyl, aryl or alkyl aryl, and; R<sup>2</sup> represents benzo-anellated, pyrido-anellated or thieno-anellated cycloalk(en)yl, oxacycloalk(en)yl or thiacycloalk(en)yl, whereby all cyclic and heterocyclic groupings can be substituted. The invention also relates to a method for producing the substituted N-cyano amidines and to their use as herbicides.</p>  |    |  |
| (57) Zusammenfassung  | <p>Die Erfindung betrifft neue substituierte N-Cyano-amidine der allgemeinen Formel (I), in welcher R<sup>1</sup> für Wasserstoff oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Cycloalkyl, Cycloalkylalkyl, Aryl oder Arylalkyl steht und R<sup>2</sup> für jeweils benzoannelliertes, pyridoannelliertes oder thienoannelliertes Cycloalk(en)yl, Oxacycloalk(en)yl oder Thiacycloalk(en)yl steht, wobei alle cyclischen und heterocyclischen Gruppierungen substituiert sein können, sowie Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Herbizide.</p>  |    |  |

**LEDIGLICH ZUR INFORMATION**

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

|    |                              |    |                                      |    |  |    |                                   |
|----|------------------------------|----|--------------------------------------|----|--|----|-----------------------------------|
| AL | Albanien                     | ES | Spanien                              | LS | Lesotho  | SI | Slowenien                         |
| AM | Armenien                     | FI | Finnland                             | LT | Litauen  | SK | Slowakei                          |
| AT | Österreich                   | FR | Frankreich                           | LU | Luxemburg  | SN | Senegal                           |
| AU | Australien                   | GA | Gabun                                | LV | Lettland   | SZ | Swasiland                         |
| AZ | Aserbaidschan                | GB | Vereinigtes Königreich               | MC | Monaco   | TD | Tschad                            |
| BA | Bosnien-Herzegowina          | GE | Georgien                             | MD | Republik Moldau                                    | TG | Togo                              |
| BB | Barbados                     | GH | Ghana                                | MG | Madagaskar   | TJ | Tadschikistan                     |
| BE | Belgien                      | GN | Guinea                               | MK | Die ehemalige jugoslawische<br>Republik Mazedonien | TM | Turkmenistan                      |
| BF | Burkina Faso                 | GR | Griechenland                         | ML | Mali   | TR | Türkei                            |
| BG | Bulgarien                    | HU | Ungarn                               | MN | Mongolei   | TT | Trinidad und Tobago               |
| BJ | Benin                        | IE | Irland                               | MR | Mauritanien  | UA | Ukraine                           |
| BR | Brasilien                    | IL | Israel                               | MW | Malawi   | UG | Uganda                            |
| BY | Belarus                      | IS | Island                               | MX | Mexiko   | US | Vereinigte Staaten von<br>Amerika |
| CA | Kanada                       | IT | Italien                              | NE | Niger  | UZ | Usbekistan                        |
| CF | Zentralafrikanische Republik | JP | Japan                                | NL | Niederlande  | VN | Vietnam                           |
| CG | Kongo                        | KE | Kenia                                | NO | Norwegen   | YU | Jugoslawien                       |
| CH | Schweiz                      | KG | Kirgisistan                          | NZ | Neuseeland   | ZW | Zimbabwe                          |
| CI | Côte d'Ivoire                | KP | Demokratische Volksrepublik<br>Korea | PL | Polen  |    |                                   |
| CM | Kamerun                      | KR | Republik Korea                       | PT | Portugal   |    |                                   |
| CN | China                        | KZ | Kasachstan                           | RO | Rumänien   |    |                                   |
| CU | Kuba                         | LC | St. Lucia                            | RU | Russische Föderation                               |    |                                   |
| CZ | Tschechische Republik        | LI | Liechtenstein                        | SD | Sudan  |    |                                   |
| DE | Deutschland                  | LK | Sri Lanka                            | SE | Schweden   |    |                                   |
| DK | Dänemark                     | LR | Liberia                              | SG | Singapur   |    |                                   |

**Substituierte N-Cyano-amidine**

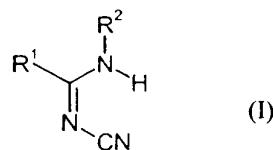
Die Erfahrung betrifft neue substituierte N-Cyano-amidine, ein Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Herbizide.

5

Es ist bereits bekannt, dass bestimmte substituierte N-Cyano-guanidine herbizide Eigenschaften aufweisen (vgl. DE-A-2505301, US-A-4661520, US-A-4684398, US-A-4689348, J. Agric. Food Chem. 37 (1989), 809-814). Die Eigenschaften der vorbekannten substituierten N-Cyano-guanidine genügen jedoch unter verschiedenen Aspekten nicht den hohen Anforderungen an moderne Pflanzenbehandlungsmittel.

10

Es wurden nun die neuen substituierten N-Cyano-amidine der allgemeinen Formel (I),



15

in welcher

$\text{R}^1$  für Wasserstoff oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Cycloalkyl, Cycloalkylalkyl, Aryl oder Arylalkyl steht und

20

$\text{R}^2$  für jeweils benzoannelliertes, pyridoannelliertes oder thienoannelliertes Cycloalk(en)yl, Oxacycloalk(en)yl oder Thiacycloalk(en)yl steht, wobei alle cyclischen und heterocyclischen Gruppierungen substituiert sein können,

gefunden.

25

Die allgemeine Formel (I) schließt die jeweils möglichen E- und Z-Konfigurationsisomeren mit ein.

In den Definitionen sind die Kohlenwasserstoffketten, wie Alkyl, Alkenyl oder Alkinyl, jeweils geradkettig oder verzweigt.

Bevorzugte Substituenten der in den oben und nachstehend erwähnten Formeln aufgeführten Reste werden im folgenden erläutert.

5        R<sup>1</sup>     steht bevorzugt für Wasserstoff, für gegebenenfalls durch Cyano, Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfinyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl substituiertes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkenyl oder Alkinyl mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl substituiertes Cycloalkyl oder Cycloalkylalkyl mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Cycloalkylgruppen und gegebenenfalls 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, für jeweils gegebenenfalls durch Nitro,

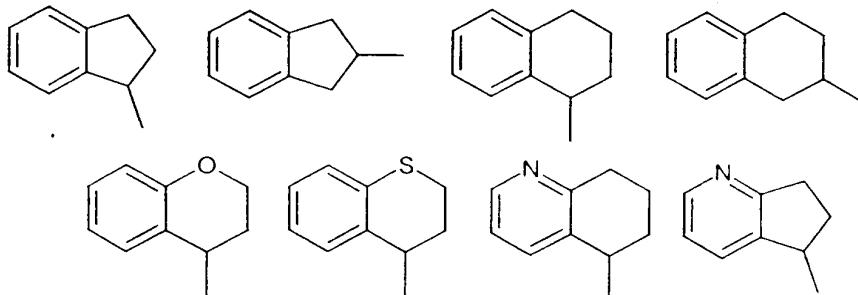
10

15

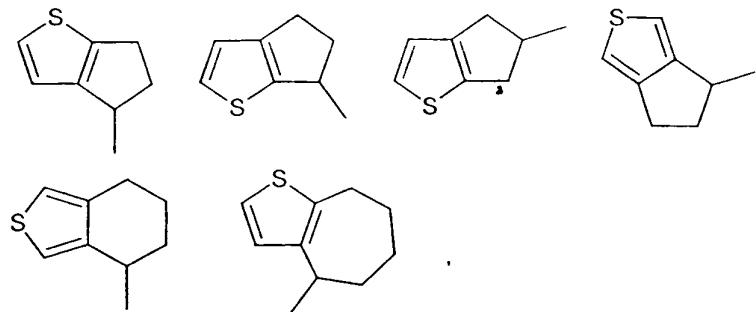
Cyano, Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy substituiertes Aryl oder Arylalkyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen in den Arylgruppen und gegebenenfalls 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil.

20

R<sup>2</sup>     steht bevorzugt für jeweils benzoannelliertes, pyridoannelliertes oder thienoannelliertes Cycloalk(en)yl, Oxacycloalk(en)yl oder Thiacycloalk(en)yl aus der nachstehenden Aufzählung



25



wobei alle cyclischen und heterocyclischen Gruppierungen vorzugsweise durch eine der nachstehend aufgeföhrten Gruppierungen substituiert sein können:

10 Nitro, Hydroxy, Amino, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Formylamino, Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfinyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylsulfinyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylsulfonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, Di-(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl)-amino, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl-carbonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-carbonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino-carbonyl, Di-(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl)-amino-carbonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl-carbonyl-amino, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-carbonyl-amino, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl-amino-carbonyl-amino, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl-sulfonyl-amino.

15 R<sup>1</sup> steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Brom substituiertes Ethenyl, Propenyl, Butenyl, Ethinyl, Propinyl oder Butinyl, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cyclopropylmethyl, Cyclobutylmethyl, Cyclopentylmethyl oder Cyclohexylmethyl, für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n-

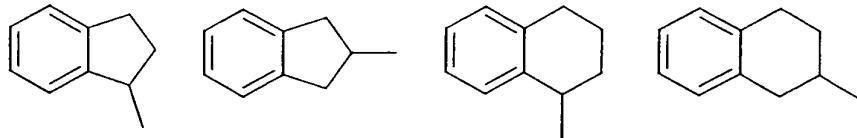
oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Disfluormethoxy oder Trifluormethoxy substituiertes Phenyl oder Benzyl.

5         $R^2$  steht besonders bevorzugt für eine der vorstehend genannten cyclischen und heterocyclischen Gruppierungen, wobei die Substituenten aus einer der nachstehend aufgeführten Gruppierungen ausgewählt sind:

Nitro, Hydroxy, Amino, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Formylamino, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Di-  
10        fluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluor-  
methyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Disfluor-  
methoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluordichlormethoxy,  
Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Disfluormethylthio, Trifluor-  
15        methylthio, Chlordifluormethylthio, Fluordichlormethylthio, Methylsulfinyl,  
Ethylsulfinyl, Trifluormethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Tri-  
fluormethylsulfonyl, Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, Di-  
methylamino, Diethylamino, Acetyl, Propionyl, n- oder i-Butyroyl, Methoxy-  
20        carbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, Methylaminocarbonyl,  
Ethylaminocarbonyl, n- oder i-Propylaminocarbonyl, Dimethylaminocar-  
bonyl, Diethylaminocarbonyl, Acetylamino, Propionylamino, n- oder i-  
Butyroylamino, Methoxycarbonylamino, Ethoxycarbonylamino, n- oder i-  
25        Propoxycarbonylamino, Methylaminocarbonylamino, Ethylaminocarbonyl-  
amino, n- oder i-Propylaminocarbonylamino, Methylsulfonylamino, Ethyl-  
sulfonylamino, n- oder i-Propylsulfonylamino.

25         $R^1$  steht ganz besonders bevorzugt für Wasserstoff und für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethyl-  
sulfonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl.

R<sup>2</sup> steht ganz besonders bevorzugt für benzoannelliertes Cycloalk(en)yl aus der nachstehenden Aufzählung

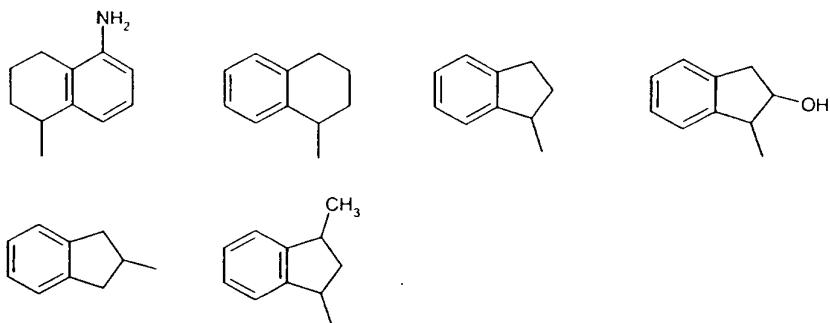


5

wobei alle cyclischen Gruppierungen durch eine der vorstehend aufgeführten Gruppierungen substituiert sein können:

R<sup>1</sup> steht am meisten bevorzugt für Wasserstoff, Methyl, Ethyl oder n- oder i-Propyl.

R<sup>2</sup> steht am meisten bevorzugt für eine der folgenden Gruppierungen:



15

Erfindungsgemäß bevorzugt sind die Verbindungen der Formel (I), in welchen eine Kombination der vorstehend als bevorzugt aufgeführten Bedeutungen vorliegt.

Erfindungsgemäß besonders bevorzugt sind die Verbindungen der Formel (I), in welchen eine Kombination der vorstehend als besonders bevorzugt aufgeführten Bedeutungen vorliegt.

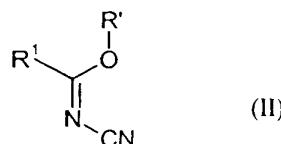
Erfindungsgemäß ganz besonders bevorzugt sind die Verbindungen der Formel (I), in welchen eine Kombination der vorstehend als ganz besonders bevorzugt aufgeführten Bedeutungen vorliegt.

5      Erfindungsgemäß am meisten bevorzugt sind die Verbindungen der Formel (I), in welchen eine Kombination der vorstehend als am meisten bevorzugt aufgeführten Bedeutungen vorliegt.

10     Die oben aufgeführten allgemeinen oder in Vorzugsbereichen aufgeführten Restdefinitionen gelten sowohl für die Endprodukte der Formel (I) als auch entsprechend für die jeweils zur Herstellung benötigten Ausgangs- oder Zwischenprodukte. Diese Restedefinitionen können untereinander, also auch zwischen den angegebenen bevorzugten Bereichen beliebig kombiniert werden.

15     Die neuen substituierten N-Cyano-amidine der allgemeinen Formel (I) weisen interessante biologische Eigenschaften auf. Sie zeichen sich insbesondere durch starke herbizide Wirksamkeit aus.

20     Man erhält die neuen substituierten N-Cyano-amidine der allgemeinen Formel (I), wenn man N-Cyano-imidsäureester der allgemeinen Formel (II)

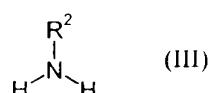


in welcher

25      $\text{R}^1$  die vorstehend angegebenen Bedeutungen hat und

$\text{R}'$  für Alkyl steht,

mit Aminoverbindungen der allgemeinen Formel (III)

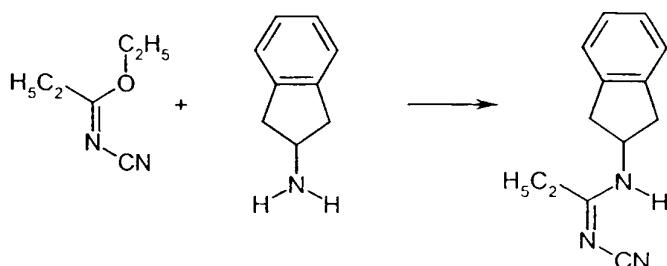


in welcher

5  $\text{R}^2$  die vorstehend angegebenen Bedeutungen hat,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt.

10 Verwendet man beispielsweise N-Cyano-propanimidsäure-ethylester und Indan-2-ylamin als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf beim erfundungsgemäßen Verfahren durch das folgende Formelschema skizziert werden:



15

Die beim erfundungsgemäßen Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der allgemeinen Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden N-Cyano-imidsäureester sind durch die Formel (II) allgemein definiert. In der allgemeinen Formel (II) hat  $\text{R}^1$  vorzugsweise diejenige Bedeutung, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfundungsgemäßen Verbindungen der allgemeinen Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt, ganz besonders bevorzugt oder am meisten bevorzugt für  $\text{R}^1$  angegeben worden ist;  $\text{R}^1$  steht vorzugsweise für Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, insbesondere für Methyl oder Ethyl.

Die N-Cyano-imidsäureester der allgemeinen Formel (II) sind bekannt und/oder können nach an sich bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. J. Am. Chem. Soc. 104 (1982), 235-239; loc. cit. 106 (1984), 2805-2811; J. Org. Chem. 28 (1963), 1816-1821; loc. cit. 46 (1981), 1457-1465; Synthesis 1983, 402-404; Tetrahedron Lett. 21 (1980), 909-912).

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der allgemeinen Formel (I) weiter als Ausgangsstoffe zu verwendenden Aminoverbindungen sind durch die Formel (III) allgemein definiert. In der allgemeinen Formel (III) hat R<sup>2</sup> vorzugsweise diejenige Bedeutung, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der allgemeinen Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt, ganz besonders bevorzugt oder am meisten bevorzugt für R<sup>2</sup> angegeben worden ist.

Die Aminoverbindungen der allgemeinen Formel (III) sind bekannt und/oder können nach an sich bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. J. Am. Chem. Soc. 88 (1966), 2233-2240; loc. cit. 95 (1973), 4083-4084); J. Chem. Soc. C 1966, 717-722; Synthesis 1980, 695-697; Tetrahedron 24 (1968), 3681-3696; loc. cit. 50 (1994), 3627-3638).

Das erfindungsgemäße Verfahren zu Herstellung von Verbindungen der allgemeinen Formel (I) wird gegebenenfalls unter Verwendung eines Reaktionshilfsmittels durchgeführt. Als Reaktionshilfsmittel für das erfindungsgemäße Verfahren kommen im allgemeinen die üblichen anorganischen oder organischen Basen oder Säure-akzeptoren in Betracht. Hierzu gehören vorzugsweise Alkalimetall- oder Erdalkalimetall- -acetate, -amide, -carbonate, -hydrogencarbonate, -hydride, -hydroxide oder -alkanolate, wie beispielsweise Natrium-, Kalium- oder Calcium-acetat, Lithium-, Natrium-, Kalium- oder Calcium-amid, Natrium-, Kalium- oder Calcium-carbonat, Natrium-, Kalium- oder Calcium-hydrogencarbonat, Lithium-, Natrium-, Kalium- oder Calcium-hydrid, Lithium-, Natrium-, Kalium- oder Calcium-hydroxid, Natrium- oder Kalium- -methanolat, -ethanolat, -n- oder -i-propanolat, -n-, -i-, -s- oder -t-

butanolat; weiterhin auch basische organische Stickstoffverbindungen, wie beispielsweise Trimethylamin, Triethylamin, Tripropylamin, Tributylamin, Ethyl-diisopropylamin, N,N-Dimethyl-cyclohexylamin, Dicyclohexylamin, Ethyl-dicyclohexylamin, N,N-Dimethyl-anilin, N,N-Dimethyl-benzylamin, Pyridin, 2-Methyl-, 3-Methyl-, 4-Methyl-, 2,4-Dimethyl-, 2,6-Dimethyl-, 3,4-Dimethyl- und 3,5-Dimethyl-pyridin, 5-Ethyl-2-methyl-pyridin, 4-Dimethylamino-pyridin, N-Methyl-piperidin, 1,4-Diazabicyclo[2,2,2]-octan (DABCO), 1,5-Diazabicyclo[4,3,0]-non-5-en (DBN), oder 1,8-Diazabicyclo[5,4,0]-undec-7-en (DBU).

10 In den meisten Fällen kann auf die Verwendung eines der oben genannten Reaktionshilfsmittel verzichtet werden.

Das erfindungsgemäße Verfahren zur Herstellung der Verbindungen der allgemeinen Formel (I) wird vorzugsweise unter Verwendung eines Verdünnungsmittels durchgeführt. Als Verdünnungsmittel kommen neben Wasser vor allem inerte organische Lösungsmittel in Betracht. Hierzu gehören insbesondere aliphatische, alicyclische oder aromatische, gegebenenfalls halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Benzin, Benzol, Toluol, Xylol, Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Petrolether, Hexan, Cyclohexan, Dichlormethan, Chloroform, Tetrachlorkohlenstoff; Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Dioxan, Tetrahydrofuran oder Ethylenglykoldimethyl- oder -diethylether; Ketone, wie Aceton, Butanon oder Methyl-isobutylketon; Nitrile, wie Acetonitril, Propionitril oder Butyronitril; Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methyl-formanilid, N-Methyl-pyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid; Ester wie Essigsäuremethylester oder Essigsäureethylester, Sulfoxide, wie Dimethylsulfoxid, Alkohole, wie Methanol, Ethanol, n- oder i-Propanol, Ethylenglykolmonomethylether, Ethylenglykolmonoethylether, Diethylenglykolmonomethylether, Diethylenglykolmonoethylether, deren Gemische mit Wasser oder reines Wasser.

30 Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man

bei Temperaturen zwischen 0°C und 150°C, vorzugsweise zwischen 10°C und 120°C.

Das erfindungsgemäße Verfahren wird im allgemeinen unter Normaldruck durchgeführt. Es ist jedoch auch möglich, das erfindungsgemäße Verfahren unter erhöhtem oder verminderem Druck - im allgemeinen zwischen 0,1 bar und 10 bar - durchzuführen.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens werden die Ausgangsstoffe im allgemeinen in angenähert äquimolaren Mengen eingesetzt. Es ist jedoch auch möglich, eine der Komponenten in einem größeren Überschuss zu verwenden. Die Umsetzung wird im allgemeinen in einem geeigneten Verdünnungsmittel, gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels durchgeführt und das Reaktionsgemisch wird im allgemeinen mehrere Stunden bei der erforderlichen Temperatur geführt. Die Aufarbeitung wird nach üblichen Methoden durchgeführt (vgl. die Herstellungsbeispiele).

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als Defoliants, Desiccants, Krautabtötungsmittel und insbesondere als Unkrautvernichtungsmittel verwendet werden. Unter Unkraut im weitesten Sinne sind alle Pflanzen zu verstehen, die an Orten aufwachsen, wo sie unerwünscht sind. Ob die erfindungsgemäßen Stoffe als totale oder selektive Herbizide wirken, hängt im wesentlichen von der angewendeten Menge ab. Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können z.B. bei den folgenden Pflanzen verwendet werden:

Dikotyle Unkräuter der Gattungen: Sinapis, Lepidium, Galium, Stellaria, Matricaria, Anthemis, Galinsoga, Chenopodium, Urtica, Senecio, Amaranthus, Portulaca, Xanthium, Convolvulus, Ipomoea, Polygonum, Sesbania, Ambrosia, Cirsium, Carduus, Sonchus, Solanum, Rorippa, Rotala, Lindernia, Lamium, Veronica, Abutilon, Emex, Datura, Viola, Galeopsis, Papaver, Centaurea, Trifolium, Ranunculus, Taraxacum.

Dikotyle Kulturen der Gattungen: Gossypium, Glycine, Beta, Daucus, Phaseolus, Pisum, Solanum, Linum, Ipomoea, Vicia, Nicotiana, <sup>1</sup>Lycopersicon, Arachis, Brassica, Lactuca, Cucumis, Cucurbita.

5

Monokotyle Unkräuter der Gattungen: Echinochloa, Setaria, Panicum, Digitaria, Phleum, Poa, Festuca, Eleusine, Brachiaria, Lolium, Bromus, Avena, Cyperus, Sorghum, Agropyron, Cynodon, Monochoria, Fimbristylis, Sagittaria, Eleocharis, Scirpus, Paspalum, Ischaemum, Sphenoclea, Dactyloctenium, Agrostis, Alopecurus, 10 Apera, Aegilops, Phalaris.

Monokotyle Kulturen der Gattungen: Oryza, Zea, Triticum, Hordeum, Avena, Secale, Sorghum, Panicum, Saccharum, Ananas, Asparagus, Allium.

15

Die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe ist jedoch keineswegs auf diese Gattungen beschränkt, sondern erstreckt sich in gleicher Weise auch auf andere Pflanzen.

20

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe eignen sich in Abhängigkeit von der Konzentration zur Totalunkrautbekämpfung, z.B. auf Industrie- und Gleisanlagen und auf Wegen und Plätzen mit und ohne Baumbewuchs. Ebenso können die erfindungsgemäßen Wirkstoffe zur Unkrautbekämpfung in Dauerkulturen, z.B. Forst, Ziergehölz-, Obst-, Wein-, Citrus-, Nuss-, Bananen-, Kaffee-, Tee-, Gummi-, Ölpalm-, Kakao-, Beerenfrucht- und Hopfenanlagen, auf Zier- und Sportrasen und Weideflächen sowie zur selektiven Unkrautbekämpfung in einjährigen Kulturen eingesetzt werden.

25

Die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) zeigen starke herbizide Wirksamkeit und ein breites Wirkungsspektrum bei Anwendung auf dem Boden und auf oberirdische Pflanzenteile. Sie eignen sich in gewissem Umfang auch zur selektiven 30

Bekämpfung von monokotylen und dikotylen Unkräutern in monokotylen und dikotylen Kulturen, sowohl im Vorauflauf- als auch im Nachauflauf-Verfahren.

Die Wirkstoffe können in die üblichen Formulierungen übergeführt werden, wie  
5 Lösungen, Emulsionen, Spritzpulver, Suspensionen, Pulver, Stäubemittel, Pasten, lösliche Pulver, Granulate, Suspensions-Emulsions-Konzentrate, Wirkstoff-im-prägnierte Natur- und synthetische Stoffe sowie Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen.

10 Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z. B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaumerzeugenden Mitteln.

15 Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen in Frage: Aromaten, wie Xylol, Toluol, oder Alkyl-naphthaline, chlorierte Aromaten und chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie  
20 Chlorbenzole, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfraktionen, mineralische und pflanzliche Öle, Alkohole, wie Butanol oder Glykol sowie deren Ether und Ester, Ketone wie Aceton, Methylethylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser.

25 Als feste Trägerstoffe kommen in Frage: z.B. Ammoniumsalze und natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate, als feste Trägerstoffe für Granulate  
30 kommen in Frage: z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sciolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen

und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnussschalen, Maiskolben und Tabakstengeln; als Emulgier- und/oder schaum- erzeugende Mittel kommen in Frage: z.B. nichtionogene und anionische Emul- 5 gatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäure-Ester, Polyoxyethylen-Fettalkohol-Ether, z.B.

Alkylarylpolyglykolether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweiß- hydrolysate; als Dispergiermittel kommen in Frage: z.B. Lignin-Sulfitablaugen und 10 Methylcellulose.

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche 15 und synthetische pulvige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kephaline und Lecithine und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

15 Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyaninfarbstoffe und Spurennährstoffe wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.

20 Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen 25 auch in Mischung mit bekannten Herbiziden zur Unkrautbekämpfung Verwendung finden, wobei Fertigformulierungen oder Tankmischungen möglich sind.

Für die Mischungen kommen bekannte Herbizide infrage, beispielsweise

30 Acetochlor, Acifluorfen(-sodium), Aclonifen, Alachlor, Alloxydim(-sodium), Ametryne, Amidochlor, Amidosulfuron, Anilofos, Asulam, Atrazine, Azafenidin, Azimsulfuron, Benazolin(-ethyl), Benfuresate, Bensulfuron(-methyl), Bentazon,

Benzobicyclon, Benzofenap, Benzoylprop(-ethyl), Bialaphos, Bifenox, Bispyribac(-sodium), Bromobutide, Bromofenoxim, Bromoxynil, Butachlor, Butroxydim, Butylate, Cafenstrole, Caloxydim, Carbetamide, Carfentrazone(-ethyl), Chlomethoxyfen, Chloramben, Chloridazon, Chlorimuron(-ethyl), Chlornitrofen, Chlor-sulfuron, Chlortoluron, Cinidon(-ethyl), Cinmethylin, Cinosulfuron, Clefoxydim, Clethodim, Clodinafop(-propargyl), Clomazone, Clomeprop, Clopyralid, Clopyrasulfuron(-methyl), Cloransulam(-methyl), Cumyluron, Cyanazine, Cybutryne, Cycloate, Cyclosulfamuron, Cycloxydim, Cyhalofop(-butyl), 2,4-D, 2,4-DB, 2,4-DP, Desmedipham, Diallate, Dicamba, Diclofop(-methyl), Diclosulam, Diethyltethyl(-ethyl), Difenoquat, Diflufenican, Diflusenzopyr, Dimefuron, Dimepiperate, Dimethachlor, Dimethametryn, Dimethenamid, Dimexyflam, Dinitramine, Diphenamid, Diquat, Di-thiopyr, Diuron, Dymron, Epropodan, EPTC, Esprocarb, Ethalfluralin, Ethametsulfuron(-methyl), Ethofumesate, Ethoxyfen, Ethoxysulfuron, Etobenzanid, Fenoxaprop(-P-ethyl), Fentrazamide, Flamprop(-isopropyl), Flamprop(-isopropyl-L), Flamprop(-methyl), Flazasulfuron, Florasulam, Fluazifop(-P-butyl), Fluazolate, Flucarbazone, Flufenacet, Flumetsulam, Flumiclorac(-pentyl), Flumioxazin, Flumipropyn, Flumetsulam, Fluometuron, Fluorochloridone, Fluoroglycofen(-ethyl), Flupoxam, Fluprop-acil, Flurpyrsulfuron(-methyl, -sodium), Flurenol(-butyl), Fluridone, Fluroxypyr(-methyl), Flurprimidol, Flurtamone, Fluthiacet(-methyl), Fluthiamide, Fomesafen, Glufosinate(-ammonium), Glyphosate(-isopropylammonium), Halosafen, Haloxyfop(-ethoxyethyl), Haloxyfop(-P-methyl), Hexazinone, Imazamethabenz(-methyl), Imazamethapyr, Imazamox, Imazapic, Imazapyr, Imazaquin, Imazethapyr, Imazosulfuron, Iodosulfuron(-methyl, -sodium), Ioxynil, Isopropalin, Isoproturon, Isouron, Isoxaben, Isoxachlortole, Isoxaflutole, Isoxapryifop, Lactofen, Lenacil, Linuron, MCPA, MCPP, Mefenacet, Mesotrione, Metamitron, Metazachlor, Methabenzthiazuron, Metobenzuron, Metobromuron, (alpha-)Metolachlor, Metosulam, Metoxuron, Metribuzin, Metsulfuron(-methyl), Molinate, Monolinuron, Naproanilide, Napropamide, Neburon, Nicosulfuron, Norflurazon, Orbencarb, Oryzalin, Oxadiargyl, Oxdiazon, Oxasulfuron, Oxaziclofone, Oxyfluorfen, Paraquat, Pelargonsäure, Pendimethalin, Pendralin, Pentozazone, Phenmedipham, Piperophos, Pretilachlor, Primsulfuron(-methyl), Prometryn, Propachlor, Propanil, Propaquizafop, Propisochlor,

Propyzamide, Prosulfocarb, Prosulfuron, Pyraflufen(-ethyl), Pyrazolate, Pyrazosulfuron(-ethyl), Pyrazoxyfen, Pyribenzoxim, Pyributicarb, Pyridate, Pyriminobac(-methyl), Pyriproxyfen(-sodium), Quinchlorac, Quinmerac, Quinoclamine, Quizalofop(-P-ethyl), Quizalofop(-P-tefuryl), Rimsulfuron, Sethoxydim, Simazine, Simetryn,  
5 Sulcotrione, Sulfentrazone, Sulfometuron(-methyl), Sulfosate, Sulfosulfuron, Tebutam, Tebuthiuron, Tepraloxydim, Terbutylazine, Terbutryn, Thenylchlor, Thiafluamide, Thiazopyr, Thidiazimin, Thisensulfuron(-methyl), Thiobencarb, Tiocarbazil, Tralkoxydim, Triallate, Triasulfuron, Tribenuron(-methyl), Triclopyr, Tridiphane, Trifluralin und Triflusulfuron.

10

Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Fungiziden, Insektiziden, Akariziden, Nematiziden, Schutzstoffen gegen Vogelfraß, Pflanzen-nährstoffen und Bodenstrukturverbesserungsmitteln ist möglich.

15

Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus durch weiteres Verdünnen bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Emulsionen, Pulver, Pasten und Granulate angewandt werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z.B. durch Gießen, Spritzen, Sprühen, Streuen.

20

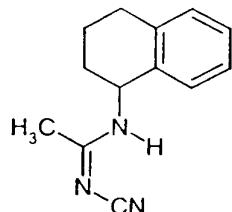
Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können sowohl vor als auch nach dem Auflaufen der Pflanzen appliziert werden. Sie können auch vor der Saat in den Boden einge-arbeitet werden.

25

Die angewandte Wirkstoffmenge kann in einem größeren Bereich schwanken. Sie hängt im wesentlichen von der Art des gewünschten Effektes ab. Im allgemeinen liegen die Aufwandmengen zwischen 1 g und 10 kg Wirkstoff pro Hektar Boden-fläche, vorzugsweise zwischen 5 g und 5 kg pro ha.

30

Die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geht aus den nachfolgenden Beispielen hervor.

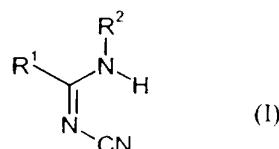
Herstellungsbeispiele:Beispiel 1

5

Eine Mischung aus 0,98 g (10 mMol) N-Cyano-ethanimidsäure-methylester, 1,42 g (10 mMol) 1,2,3,4-Tetrahydro-1-naphthylamin und 20 ml Wasser wird 12 Stunden bei Raumtemperatur (ca. 20°C) gerührt. Anschließend wird das kristallin angefallene Produkt durch Absaugen isoliert, mit wenig Wasser und Diethylether gewaschen und 10 auf einer Tonscheibe getrocknet.

Man erhält 1,3 g (62% der Theorie) N'-Cyano-N-(1,2,3,4-tetrahydro-1-naphthyl)-ethanimidamid vom Schmelzpunkt 113°C.

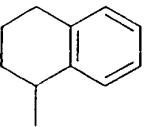
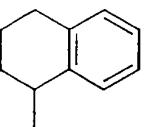
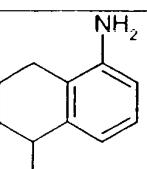
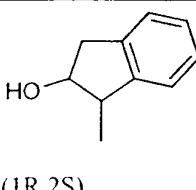
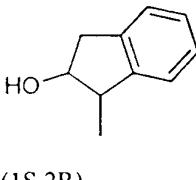
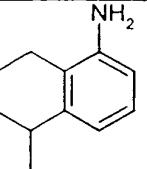
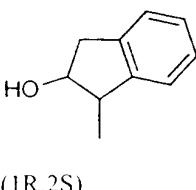
15 Analog zu Beispiel 1 sowie entsprechend der allgemeinen Beschreibung des erfindungsgemäßen Herstellungsverfahrens können beispielsweise auch die in der nachstehenden Tabelle 1 aufgeführten Verbindungen der allgemeinen Formel (I) hergestellt werden.

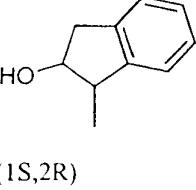
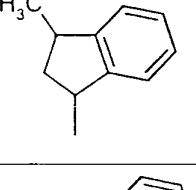
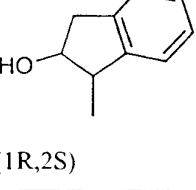
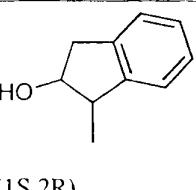
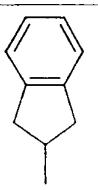


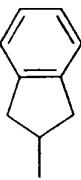
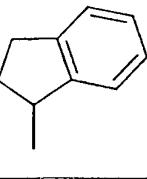
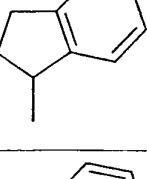
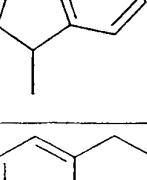
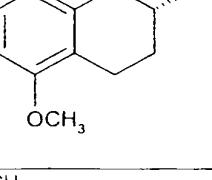
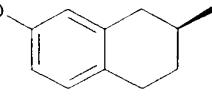
20

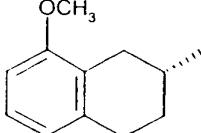
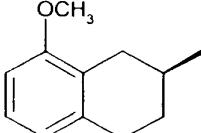
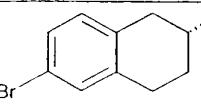
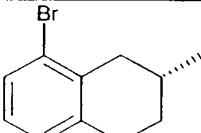
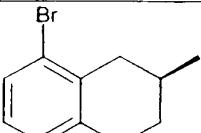
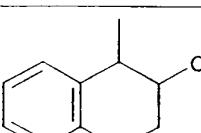
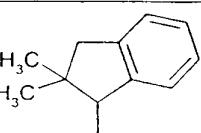
Tabelle 1: Beispiele für die Verbindungen der Formel (I)

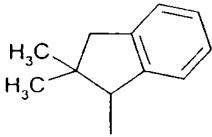
| Bsp.-Nr. | R <sup>1</sup>  | R <sup>2</sup> | Schmelzpunkt (°C) |
|----------|-----------------|----------------|-------------------|
| 2        | H               |                | 162°C             |
| 3        | H               |                | 148               |
| 4        | CH <sub>3</sub> |                | 180               |
| 5        | CH <sub>3</sub> |                | 139               |
| 6        | CH <sub>3</sub> |                | 176               |
| 7        | CH <sub>3</sub> |                | 173               |

| Bsp.-Nr. | R <sup>1</sup>                   | R <sup>2</sup>   | Schmelzpunkt (°C) |
|----------|----------------------------------|--|-------------------|
| 8        | C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>    |               | 117<br>*<br>117   |
| 9        | C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -n |               | 149               |
| 10       | C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>    |               | 203               |
| 11       | C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>    | <br>(1R,2S)  | 140               |
| 12       | C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>    | <br>(1S,2R) | 141               |
| 13       | C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -n |             | 194               |
| 14       | C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -n | <br>(1R,2S) | (amorph)          |

| Bsp.-Nr. | R <sup>1</sup>                   | R <sup>2</sup>  | Schmelzpunkt (°C) |
|----------|----------------------------------|---|-------------------|
| 15       | C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -n |    | (amorph)<br>*     |
| 16       | H                                |    | 223               |
| 17       | H                                |   | 149               |
| 18       | H                                |  | 156               |
| 19       | H                                |  | 136               |
| 20       | CH <sub>3</sub>                  |  | 206               |

| Bsp.-Nr. | R <sup>1</sup>                   | R <sup>2</sup>  | Schmelzpunkt (°C) |
|----------|----------------------------------|---|-------------------|
| 21       | C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>    |    | 150               |
| 22       | C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -n |    | 126               |
| 23       | H                                |   | 105               |
| 24       | C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>    |  | 133               |
| 25       | C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -n |  | 84                |
| 26       | CH <sub>3</sub>                  |  |                   |
| 27       | CH <sub>3</sub>                  |  | 152               |

| Bsp.-Nr. | R <sup>1</sup>  | R <sup>2</sup>  | Schmelzpunkt (°C) |
|----------|-----------------|---|-------------------|
| 28       | CH <sub>3</sub> |    | 144               |
| 29       | CH <sub>3</sub> |    | 142               |
| 30       | CH <sub>3</sub> |    | 228               |
| 31       | CH <sub>3</sub> |   | 205               |
| 32       | CH <sub>3</sub> |  | 204               |
| 33       | CH <sub>3</sub> |  |                   |
| 34       | CH <sub>3</sub> |  |                   |

| Bsp.-Nr. | R <sup>1</sup> | R <sup>2</sup>   | Schmelzpunkt (°C) |
|----------|----------------|--|-------------------|
| 35       | H              |  A chemical structure showing a cyclopentene ring with a methyl group at the 1-position and a 1,1,2-trimethylpropyl group at the 3-position. The trimethylpropyl group is attached to the cyclopentene ring via a methylene bridge. | *                 |

**Anwendungsbeispiele:****Beispiel A**

5 Pre-emergence-Test

Lösungsmittel: 5 Gewichtsteile Aceton

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

10 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

15 Samen der Testpflanzen werden in normalen Boden ausgesät. Nach ca. 24 Stunden wird der Boden so mit der Wirkstoffzubereitung besprüht, dass die jeweils gewünschte Wirkstoffmenge pro Flächeneinheit ausgebracht wird. Die Konzentration der Spritzbrühe wird so gewählt, dass in 1000 Liter Wasser pro Hektar die jeweils gewünschte Wirkstoffmenge ausgebracht wird.

20

Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle.

Es bedeuten:

25

0 % = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)

100 % = totale Vernichtung

30 In diesem Test zeigt beispielsweise die Verbindung gemäß Herstellungsbeispiel 1 starke Wirkung gegen Unkräuter.

**Beispiel B**

Post-emergence-Test

5 Lösungsmittel: 5 Gewichtsteile Aceton  
Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

10 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

15 Mit der Wirkstoffzubereitung spritzt man Testpflanzen, welche eine Höhe von 5 - 15 cm haben so, dass die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen pro Flächeneinheit ausgebracht werden. Die Konzentration der Spritzbrühe wird so gewählt, dass in 1000 l Wasser/ha die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen ausgebracht werden.

Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle.

20

Es bedeuten:

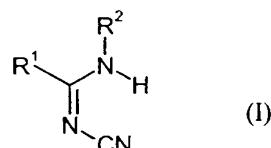
0 % = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)  
100 % = totale Vernichtung

25

In diesem Test zeigt beispielsweise die Verbindung gemäß Herstellungsbeispiel 1 starke Wirkung gegen Unkräuter.

Patentansprüche

1. Substituierte N-Cyano-amidine der allgemeinen Formel (I),



5

in welcher

R<sup>1</sup> für Wasserstoff oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl,  
Alkenyl, Alkinyl, Cycloalkyl, Cycloalkylalkyl, Aryl oder Arylalkyl  
10 steht und

10

R<sup>2</sup> für jeweils benzoannelliertes, pyridoannelliertes oder thienoannelliertes Cycloalk(en)yl, Oxacycloalk(en)yl oder Thiacycloalk(en)yl steht, wobei alle cyclischen und heterocyclischen Gruppierungen substituiert sein können.  
15

15

2. Verbindungen gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass

20

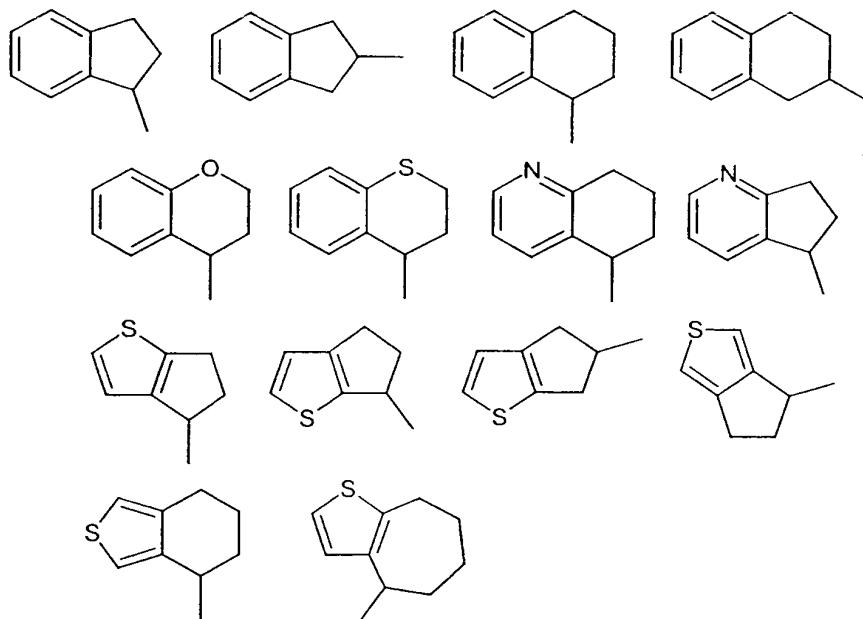
R<sup>1</sup> für Wasserstoff, für gegebenenfalls durch Cyano, Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfinyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl substituiertes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkenyl oder Alkinyl mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl substituiertes Cycloalkyl oder Cycloalkylalkyl mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Cycloalkylgruppen und gegebenenfalls 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, oder für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy oder C<sub>1</sub>-25

25

C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy substituiertes Aryl oder Arylalkyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen in den Arylgruppen und gegebenenfalls 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil steht, und

5 R<sup>2</sup> für jeweils benzoannelliertes, pyridoannelliertes oder thienoannelliertes Cycloalk(en)yl, Oxacycloalk(en)yl oder Thiacycloalk(en)yl aus der nachstehenden Aufzählung steht,

10



15

wobei alle cyclischen und heterocyclischen Gruppierungen vorzugsweise durch eine der nachstehend aufgeführten Gruppierungen substituiert sein können:

20

Nitro, Hydroxy, Amino, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Formylamino, Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfinyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylsulfinyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl,

C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylsulfonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, Di-(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl)-amino, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl-carbonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-carbonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl-amino-carbonyl, Di-(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl)-amino-carbonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl-carbonyl-amino, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-carbonyl-amino, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl-amino-carbonyl-amino, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl-sulfonyl-amino.

3. Verbindungen nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass

10 R<sup>1</sup> für Wasserstoff, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder i-Propylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder i-Propylsulfonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Brom substituiertes Ethenyl, Propenyl, Butenyl, Ethinyl, Propinyl oder Butinyl, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cyclopropylmethyl, Cyclobutylmethyl, Cyclopentylmethyl oder Cyclohexylmethyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Nitro, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Difluormethoxy oder Trifluormethoxy substituiertes Phenyl oder Benzyl steht, und

20 R<sup>2</sup> für eine der in Anspruch 1 oder 2 genannten cyclischen und heterocyclischen Gruppierungen steht, wobei die Substituenten aus einer der nachstehend aufgeführten Gruppierungen ausgewählt sein können: Nitro, Hydroxy, Amino, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Formylamino, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, n-

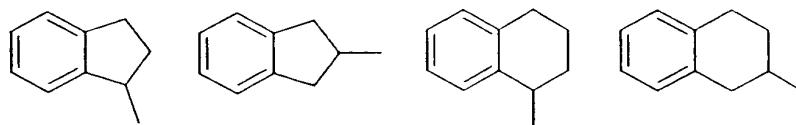
30

oder i-Propoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordinfluormethoxy, Fluordichlormethoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Chlordinfluormethylthio, Fluordichlormethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, 5 Trifluormethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Trifluormethylsulfonyl, Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, Dimethylamino, Diethylamino, Acetyl, Propionyl, n- oder i-Butyroyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, 10 Methylaminocarbonyl, Ethylaminocarbonyl, n- oder i-Propylaminocarbonyl, Dimethylaminocarbonyl, Diethylaminocarbonyl, Acetyl-amino, Propionylamino, n- oder i-Butyroylamino, Methoxycarbonylamino, Ethoxycarbonylamino, n- oder i-Propoxycarbonylamino, Methylaminocarbonylamino, Ethylaminocarbonylamino, n- oder i-Propylaminocarbonylamino, Methylsulfonylamino, Ethylsulfonyl-amino, n- oder i-Propylsulfonylamino.

4. Verbindungen gemäß einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass

20 R<sup>1</sup> für Wasserstoff und für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Methylthio, Ethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl steht, und

25 R<sup>2</sup> für benzoannelliertes Cycloalk(en)yl aus der nachstehenden Aufzählung steht



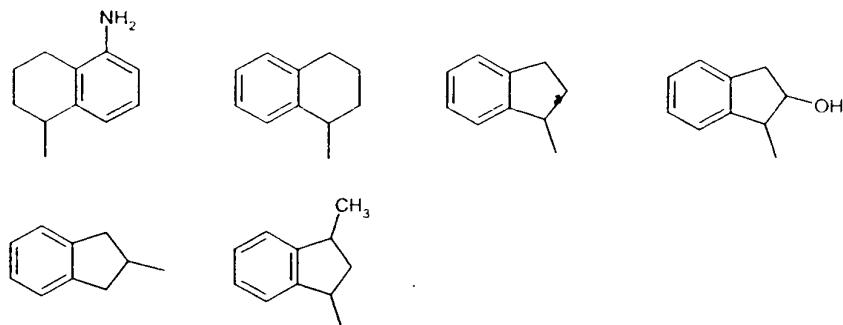
wobei alle cyclischen Gruppierungen durch eine der nachstehend aufgeführten Gruppierungen substituiert sein können:

|    |   |
|----|---|
| 5  | Nitro, Hydroxy, Amino, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Formylamino, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Difluormethyl, Dichlormethyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Fluordichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Fluordichlormethoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Chlordifluormethylthio, Fluordichlormethylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Trifluormethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Trifluormethylsulfonyl, Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, Dimethylamino, Diethylamino, Acetyl, Propionyl, n- oder i-Butyroyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, n- oder i-Propoxycarbonyl, Methylaminocarbonyl, Ethylaminocarbonyl, n- oder i-Propylaminocarbonyl, Dimethylaminocarbonyl, Diethylaminocarbonyl, Acetyl-amino, Propionylamino, n- oder i-Butyroylamino, Methoxycarbonylamino, Ethoxycarbonylamino, n- oder i-Propoxycarbonylamino, Methylaminocarbonylamino, Ethylaminocarbonylamino, n- oder i-Propylaminocarbonylamino, Methylsulfonylamino, Ethylsulfonylamino, n- oder i-Propylsulfonylamino. |
| 10 |   |
| 15 |   |
| 20 |   |

25 5. Verbindungen gemäß einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet,  
dass

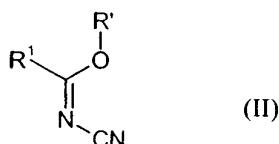
$R^1$  für Wasserstoff, Methyl, Ethyl oder n- oder i-Propyl steht, und

**R<sup>2</sup>** für eine der folgenden Gruppierungen steht:



6. Verfahren zur Herstellung von Verbindungen gemäß einem der Ansprüche 1  
bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass man N-Cyano-imidsäureester der allge-  
meinen Formel (II)

5



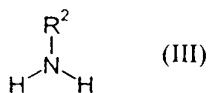
in welcher

10  $\text{R}^1$  die in einem der Ansprüche 1 bis 5 angegebenen Bedeutungen hat und

$\text{R}'$  für Alkyl steht,

mit Aminoverbindungen der allgemeinen Formel (III)

15



in welcher

20  $\text{R}^2$  die in einem der Ansprüche 1 bis 5 angegebenen Bedeutungen hat,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt.

7. **Herbizide Mittel, gekennzeichnet durch den Gehalt mindestens einer Verbindung gemäß einem der Ansprüche 1 bis 5 und üblichen Streckmitteln.**
- 5
8. **Verwendung von mindestens einer Verbindung gemäß einem der Ansprüche 1 bis 5 zur Bekämpfung von unerwünschten Pflanzen.**



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

|                              |
|------------------------------|
| International Application No |
| PCT, P 00/04013              |

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C07C261/00 A01N37/52

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C07C A01N

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, CHEM ABS Data, BEILSTEIN Data

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category * | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                     | Relevant to claim No. |
|------------|--|-----------------------|
| P, X       | DE 199 24 273 A (BAYER)<br>20 January 2000 (2000-01-20)<br>page 62, examples B2 - B7<br>---                            | 1-6                   |
| X          | EP 0 314 852 A (CIBA-GEIGY)<br>10 May 1989 (1989-05-10)<br>Page 17, example 1.01, 1.02; Pages<br>19-23, Table 1<br>--- | 1-4, 6                |
| X          | EP 0 347 378 A (CIBA-GEIGY)<br>13 June 1988 (1988-06-13)<br>example 5C<br>---  | 1-3, 6                |
| X          | EP 0 412 531 A (KAKEN PHARMACEUTICAL)<br>13 February 1991 (1991-02-13)<br>claims; examples<br>---                      | 1<br>-/-              |

 Further documents are listed in the continuation of box C. Patent family members are listed in annex.

\* Special categories of cited documents :

- \*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- \*E\* earlier document but published on or after the international filing date
- \*L\* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- \*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- \*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- \*T\* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- \*X\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- \*Y\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
- \*8\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

15 August 2000

Date of mailing of the international search report

06/09/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentdaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel: (+31-70) 340-2040, Tx: 31 651 epo nl  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Zervas, B

1

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

|                      |
|----------------------|
| Int'l Application No |
| PL, EP 00/04013      |

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Categ | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages   | Relevant to claim No. |
|-------|--|-----------------------|
| X     | EP 0 389 861 A (FUJISAWA PHARMACEUTICAL)<br>3 October 1990 (1990-10-03)<br>examples<br>---   | 1                     |
| X     | WO 95 02589 A (JAPAN TOBACCO)<br>26 January 1995 (1995-01-26)<br>page 77 -page 79<br>---   | 1                     |
| X     | EP 0 275 603 A (JANSSEN PHARMACEUTICA)<br>27 July 1988 (1988-07-27)<br>example 4B<br>---   | 1                     |
| A     | US 4 684 398 A (JOSEPH E. DUNBAR ET AL.)<br>4 August 1987 (1987-08-04)<br>cited in the application<br>claims<br>---                                | 1,7,8                 |
| A     | US 4 661 520 A (JOSEPH E. DUNBAR ET AL.)<br>28 April 1987 (1987-04-28)<br>cited in the application<br>column 5, line 13 - line 14; claims<br>----- | 1,7,8                 |

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

|                              |
|------------------------------|
| International Application No |
| PCT/EP 00/04013              |

| Patent document cited in search report | Publication date | Patent family member(s) |      | Publication date |
|--|------------------|-------------------------|------|------------------|
| DE 19924273                            | A 20-01-2000     | AU 5157399              | A    | 07-02-2000       |
|  |                  | WO 0003976              | A    | 27-01-2000       |
| EP 314852                              | A 10-05-1989     | AU 8255487              | A    | 11-05-1989       |
|  |                  | BR 8706929              | A    | 18-07-1989       |
|  |                  | CA 1294612              | A    | 21-01-1992       |
|  |                  | IL 84809                | A    | 01-12-1992       |
|  |                  | JP 1135772              | A    | 29-05-1989       |
|  |                  | US 4921955              | A    | 01-05-1990       |
|  |                  | ZA 8709396              | A    | 26-07-1989       |
| EP 347378                              | A 20-12-1989     | JP 2042077              | A    | 13-02-1990       |
|  |                  | US 4992090              | A    | 12-02-1991       |
|  |                  | ZA 8904414              | A    | 28-02-1990       |
| EP 412531                              | A 13-02-1991     | AT 105556               | T    | 15-05-1994       |
|  |                  | AU 624526               | B    | 11-06-1992       |
|  |                  | AU 6084490              | A    | 14-02-1991       |
|  |                  | CA 2022882              | A    | 12-02-1991       |
|  |                  | CZ 9003933              | A    | 12-02-1997       |
|  |                  | DE 69008791             | D    | 16-06-1994       |
|  |                  | DE 69008791             | T    | 12-01-1995       |
|  |                  | HU 54673                | A    | 28-03-1991       |
|  |                  | NO 174050               | C    | 09-03-1994       |
|  |                  | US 5095016              | A    | 10-03-1992       |
|  |                  | CN 1049500              | A    | 27-02-1991       |
|  |                  | JP 3279377              | A    | 10-12-1991       |
|  |                  | JP 3279378              | A    | 10-12-1991       |
| EP 389861                              | A 03-10-1990     | AT 126795               | T    | 15-09-1995       |
|  |                  | CA 2013163              | A    | 28-09-1990       |
|  |                  | DE 69021755             | D    | 28-09-1995       |
|  |                  | DE 69021755             | T    | 15-02-1996       |
|  |                  | JP 2300182              | A    | 12-12-1990       |
|  |                  | US 5104890              | A    | 14-04-1992       |
| WO 9502589                             | A 26-01-1995     | NONE                    |      |                  |
| EP 275603                              | A 27-07-1988     | AU 595085               | B    | 22-03-1990       |
|  |                  | AU 8297687              | A    | 23-06-1988       |
|  |                  | BR 8707032              | A    | 02-08-1988       |
|  |                  | DK 682187               | A    | 24-06-1988       |
|  |                  | HU 46677                | A, B | 28-11-1988       |
|  |                  | IL 84916                | A    | 18-07-1991       |
|  |                  | JP 63166869             | A    | 11-07-1988       |
|  |                  | PH 24230                | A    | 04-05-1990       |
|  |                  | US 4830664              | A    | 16-05-1989       |
|  |                  | US 4927449              | A    | 22-05-1990       |
|  |                  | ZA 8709613              | A    | 30-08-1989       |
| US 4684398                             | A 04-08-1987     | US 4689348              | A    | 25-08-1987       |
|  |                  | US 4692467              | A    | 08-09-1987       |
| US 4661520                             | A 28-04-1987     | NONE                    |      |                  |



INTERNATIONALER      CHERCHENBERICHT

1. nationales Aktenzeichen  
PCT/EP 00/04013

A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES  
IPK 7 C07C261/00 A01N37/52

Nach der internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprulstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)  
IPK 7 C07C A01N

Recherchierte aber nicht zum Mindestprulstoff gehorende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, CHEM ABS Data, BEILSTEIN Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

| Kategorie* | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile                            | Betr. Anspruch Nr |
|------------|---|-------------------|
| P, X       | DE 199 24 273 A (BAYER)<br>20. Januar 2000 (2000-01-20)<br>Seite 62, Beispiele B2 - B7<br>---                                 | 1-6               |
| X          | EP 0 314 852 A (CIBA-GEIGY)<br>10. Mai 1989 (1989-05-10)<br>Seite 17, Beispiele 1.01, 1.02; Seiten<br>19-23, Tabelle 1<br>--- | 1-4, 6            |
| X          | EP 0 347 378 A (CIBA-GEIGY)<br>13. Juni 1988 (1988-06-13)<br>Beispiel 5C<br>---   | 1-3, 6            |
| X          | EP 0 412 531 A (KAKEN PHARMACEUTICAL)<br>13. Februar 1991 (1991-02-13)<br>Ansprüche; Beispiele<br>---                         | 1<br>-/-          |

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen

\*A\* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonderer bedeutsam anzusehen ist

\*E\* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

\*L\* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prontatsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

\*O\* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung,

eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

\*P\* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prontatsdatum veröffentlicht worden ist

\*T\* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prontatsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

\*X\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfindenscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

\*Y\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfindenscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

\*&\* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

15. August 2000

06/09/2000

Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P. B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel: (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl.  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Zervas, B

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

|                 |                   |
|-----------------|-------------------|
| Ir              | ales Aktenzeichen |
| PL, EP 00/04013 |                   |

| C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN |  |                   |
|--|--|-------------------|
| Kategorie  | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile   | Betr. Anspruch Nr |
| X  | EP 0 389 861 A (FUJISAWA PHARMACEUTICAL)<br>3. Oktober 1990 (1990-10-03)<br>Beispiele<br>---   | 1                 |
| X  | WO 95 02589 A (JAPAN TOBACCO)<br>26. Januar 1995 (1995-01-26)<br>Seite 77 -Seite 79<br>---   | 1                 |
| X  | EP 0 275 603 A (JANSSEN PHARMACEUTICA)<br>27. Juli 1988 (1988-07-27)<br>Beispiel 4B<br>---   | 1                 |
| A  | US 4 684 398 A (JOSEPH E. DUNBAR ET AL.)<br>4. August 1987 (1987-08-04)<br>in der Anmeldung erwähnt<br>Ansprüche<br>---                                  | 1,7,8             |
| A  | US 4 661 520 A (JOSEPH E. DUNBAR ET AL.)<br>28. April 1987 (1987-04-28)<br>in der Anmeldung erwähnt<br>Spalte 5, Zeile 13 - Zeile 14; Ansprüche<br>----- | 1,7,8             |

**INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT**

Angaben zu Veröffentlichungen, die zum gleichen Patentfamilie gehören

 Nr. des Aktenzeichens  
 PL, EP 00/04013

| Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument |   | Datum der Veröffentlichung |  | Mitglied(er) der Patentfamilie |   | Datum der Veröffentlichung |
|---|---|----------------------------|--|--------------------------------|---|----------------------------|
| DE 19924273                                     | A | 20-01-2000                 |  | AU 5157399 A                   |   | 07-02-2000                 |
|   |   |                            |  | WO 0003976 A                   |   | 27-01-2000                 |
| EP 314852                                       | A | 10-05-1989                 |  | AU 8255487 A                   | * | 11-05-1989                 |
|   |   |                            |  | BR 8706929 A                   |   | 18-07-1989                 |
|   |   |                            |  | CA 1294612 A                   |   | 21-01-1992                 |
|   |   |                            |  | IL 84809 A                     |   | 01-12-1992                 |
|   |   |                            |  | JP 1135772 A                   |   | 29-05-1989                 |
|   |   |                            |  | US 4921955 A                   |   | 01-05-1990                 |
|   |   |                            |  | ZA 8709396 A                   |   | 26-07-1989                 |
| EP 347378                                       | A | 20-12-1989                 |  | JP 2042077 A                   |   | 13-02-1990                 |
|   |   |                            |  | US 4992090 A                   |   | 12-02-1991                 |
|   |   |                            |  | ZA 8904414 A                   |   | 28-02-1990                 |
| EP 412531                                       | A | 13-02-1991                 |  | AT 105556 T                    |   | 15-05-1994                 |
|   |   |                            |  | AU 624526 B                    |   | 11-06-1992                 |
|   |   |                            |  | AU 6084490 A                   |   | 14-02-1991                 |
|   |   |                            |  | CA 2022882 A                   |   | 12-02-1991                 |
|   |   |                            |  | CZ 9003933 A                   |   | 12-02-1997                 |
|   |   |                            |  | DE 69008791 D                  |   | 16-06-1994                 |
|   |   |                            |  | DE 69008791 T                  |   | 12-01-1995                 |
|   |   |                            |  | HU 54673 A                     |   | 28-03-1991                 |
|   |   |                            |  | NO 174050 C                    |   | 09-03-1994                 |
|   |   |                            |  | US 5095016 A                   |   | 10-03-1992                 |
|   |   |                            |  | CN 1049500 A                   |   | 27-02-1991                 |
|   |   |                            |  | JP 3279377 A                   |   | 10-12-1991                 |
|   |   |                            |  | JP 3279378 A                   |   | 10-12-1991                 |
| EP 389861                                       | A | 03-10-1990                 |  | AT 126795 T                    |   | 15-09-1995                 |
|   |   |                            |  | CA 2013163 A                   |   | 28-09-1990                 |
|   |   |                            |  | DE 69021755 D                  |   | 28-09-1995                 |
|   |   |                            |  | DE 69021755 T                  |   | 15-02-1996                 |
|   |   |                            |  | JP 2300182 A                   |   | 12-12-1990                 |
|   |   |                            |  | US 5104890 A                   |   | 14-04-1992                 |
| WO 9502589                                      | A | 26-01-1995                 |  | KEINE                          |   |                            |
| EP 275603                                       | A | 27-07-1988                 |  | AU 595085 B                    |   | 22-03-1990                 |
|   |   |                            |  | AU 8297687 A                   |   | 23-06-1988                 |
|   |   |                            |  | BR 8707032 A                   |   | 02-08-1988                 |
|   |   |                            |  | DK 682187 A                    |   | 24-06-1988                 |
|   |   |                            |  | HU 46677 A,B                   |   | 28-11-1988                 |
|   |   |                            |  | IL 84916 A                     |   | 18-07-1991                 |
|   |   |                            |  | JP 63166869 A                  |   | 11-07-1988                 |
|   |   |                            |  | PH 24230 A                     |   | 04-05-1990                 |
|   |   |                            |  | US 4830664 A                   |   | 16-05-1989                 |
|   |   |                            |  | US 4927449 A                   |   | 22-05-1990                 |
|   |   |                            |  | ZA 8709613 A                   |   | 30-08-1989                 |
| US 4684398                                      | A | 04-08-1987                 |  | US 4689348 A                   |   | 25-08-1987                 |
|   |   |                            |  | US 4692467 A                   |   | 08-09-1987                 |
| US 4661520                                      | A | 28-04-1987                 |  | KEINE                          |   |                            |

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**